This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

(19)日本国特許庁（ＪＰ）　(12)特　許　公　報（Ｂ２）　(11)特許出願公告番号

特公平6－38520

(24)(44)公告日　平成６年(1994)５月18日

(51)Int.Cl.[5]	識別記号	庁内整理番号	Ｆ Ｉ	技術表示箇所
Ｈ０１Ｌ　33/00		Ｎ　7514－4M		
Ｇ０２Ｂ　5/08		Ｚ　9224－2K		
// Ｃ０８Ｌ　67/00	ＬＰＭ	8933－4Ｊ		

発明の数１(全 14 頁)

(21)出願番号　特願昭61－21666

(22)出願日　昭和61年(1986)２月３日

(65)公開番号　特開昭62－179780

(43)公開日　昭和62年(1987)８月６日

(71)出願人　999999999
ポリプラスチックス株式会社
大阪府大阪市中央区安土町２丁目３番13号

(72)発明者　岡田　常義
神奈川県川崎市高津区下作延175－１

(72)発明者　谷本　重和
静岡県富士市宮下25－８

(74)代理人　弁理士　古谷　馨

審査官　松本　邦夫

(54)【発明の名称】　発光素子装置

1

【特許請求の範囲】

【請求項１】反射板が異方性溶融相を形成しうる溶融加工性ポリエステル樹脂組成物の成型物からなることを特徴とする発光素子装置。

【請求項２】異方性溶融相を形成しうる溶融加工性ポリエステル樹脂組成物が、同ポリエステルと白色顔料とからなるものである特許請求の範囲第１項記載の発光素子装置。

【請求項３】白色顔料が酸化チタンである特許請求の範囲第２項記載の発光素子装置。

【請求項４】異方性溶融相を形成しうる溶融加工性ポリエステル樹脂組成物が、同ポリエステルとフィラーとからなるものである特許請求の範囲第１項記載の発光素子装置。

【請求項５】フィラーが繊維状フィラー、板状フィラー

2

又は粒状フィラーである特許請求の範囲第４項記載の発光素子装置。

【請求項６】異方性溶融相を形成しうる溶融加工性ポリエステル樹脂組成物が、同ポリエステルとフィラー及び白色顔料とからなるものである特許請求の範囲第１項記載の発光素子装置。

【請求項７】フィラーが繊維状フィラー、板状フィラー又は粒状フィラーである特許請求の範囲第６項記載の発光素子装置。

【請求項８】繊維状フィラーがガラス繊維である特許請求の範囲第７項記載の発光素子装置。

【請求項９】繊維状フィラーがガラス繊維であり、白色顔料が酸化チタンである特許請求の範囲第７項記載の発光素子装置。

【発明の詳細な説明】

〔産業上の利用分野〕

本発明は所謂ＬＥＤ(Light Emitting Device)と称せられる発光素子装置に関し、特にその反射板の材料に特徴と有するものである。

〔従来の技術及びその問題点〕

従来、発光素子装置の主要構成部品の一つである反射板はその反射率が発光素子の性能を左右するものであるため種々検討がなされてきた。反射板に要求される性能としては、反射板自身が成型時に精密に成型出来ることは勿論であるが、エポキシ樹脂等の透明樹脂による封止或いは電子部品の半田付け等の際に加えられる高温時にもそれが変形しないことが必要であって、反射板に用いられる材料としては精密成型を可能にする高流動性と半田付け時等の高温に耐える耐熱性と言う矛盾する性質を共に備えている必要がある。更にそれらの性質は、反射板自体としての目的に要求される高反射率、高遮光率を達成するための反射板材料の組成的な改善、例えば大量の充填剤等の添加成分混入という条件下で達成される必要がある。

従来反射板の材料には所謂ＡＢＳ樹脂、ＡＢＳ樹脂の酸化チタン充填物が用いられたり、最近では変性ＰＰＯ樹脂や、ＰＢＴ樹脂を用いることが提案されている。しかしこれらの樹脂では前記の如き発光素子装置の反射板に要求される性能を充分満足するのは極めて難しい。

〔問題点を解決するための手段〕

本発明者らはかかる問題点を解決するため鋭意研究してきたが、所謂液晶ポリエステル、即ち異方性溶融相を形成しうる溶融加工性ポリエステルに着目し、研究の結果本発明に到達した。

即ち本発明は、反射板が異方性溶融相を形成しうる溶融加工性ポリエステル樹脂組成物の成型物からなることを特徴とする発光素子装置を提供するものである。

発光素子装置には種々の形式があるが、要は発光ダイオードを内面に接着した反射板からなるケースを主体とするものであって、この発光ダイオード及びその他の部品を収納したケースの開口部は透明な材料、即ちアクリル樹脂等の透明合成樹脂若しくはガラス等で封止し保護することにより発光素子装置が形成されている。

本発明に使用される液晶ポリエステルは溶融状態でポリマー分子鎖が規則的な平行配列をとる性質を有している。分子がこのように配列した状態をしばしば液晶状態または液晶性物質のネマチック相という。このようなポリマーは、一般に細長く、偏平で、分子の長軸に沿ってかなり剛性が高く、普通は同軸または平行のいずれかの関係にある複数の連鎖伸長結合を有しているようなモノマーから製造される。

異方性溶融相の性質は、直交偏光子を利用した慣用の偏光検査法により確認することができる。より具体的には、異方性溶融相の確認は、Leitz 偏光顕微鏡を使用し、Leitz ホットステージにのせた試料を窒素雰囲気下

で40倍の倍率で観察することにより実施できる。上記ポリマーは光学的に異方性である。すなわち、直交偏光子の間で検査したときに光を透過させる。試料が光学的に異方性であると、たとえ静止状態であっても偏光は透過する。

上記の如き異方性溶融相を形成するポリマーの構成成分としては

① 芳香族ジカルボン酸、脂環族ジカルボン酸の１つまたはそれ以上からなるもの

② 芳香族ジオール、脂環族ジオール、脂肪族ジオールの１つまたはそれ以上からなるもの

③ 芳香族ヒドロキシカルボン酸の１つまたはそれ以上からなるもの

④ 芳香族チオールカルボン酸の１つまたはそれ以上からなるもの

⑤ 芳香族ジチオール、芳香族チオールフェノールの１つまたはそれ以上からなるもの

⑥ 芳香族ヒドロキシアミン、芳香族ジアミンの１つまたはそれ以上からなるもの

等があげられ、異方性溶融相を形成するポリマーは

Ⅰ）①と②からなるポリエステル

II）③だけからなるポリエステル

III）①と②と③からなるポリエステル

IV）④だけからなるポリチオールエステル

Ⅴ）①と⑤からなるポリチオールエステル

VI）①と④と⑤からなるポリチオールエステル

VII）①と③と⑥からなるポリエステルアミド

VIII）①と②と③と⑥からなるポリエステルアミド

等の組み合わせから構成される。

更に上記の成分の組み合わせの範疇には含まれないが、異方性溶融相を形成するポリマーには芳香族ポリアゾメチンが含まれ、かかるポリマーの具体例としては、ポリ（ニトリロ－２－メチル－1,4 －フェニレンニトリロエチリジン－1,4 －フェニレンエチリジン）；ポリ（ニトリロ－２－メチル－1,4 －フェニレンニトリロメチリジン－1,4 －フェニレンメチリジン）；およびポリ（ニトリロ－２－クロロ－1,4 －フェニレンニトリロメチリジン－1,4 －フェニレンメチリジン）が挙げられる。

更に上記の成分の組み合わせの範疇には含まれないが、異方性溶融相を形成するポリマーとしてポリエステルカーボネートが含まれる。これは本質的に４－オキシベンゾイル単位、ジオキシフェニル単位、ジオキシカルボニル単位及びテレフタロイル単位からなるものがある。

以下に上記Ⅰ）～VIII）の構成成分となる化合物を列記する。

芳香族ジカルボン酸としては、テレフタル酸、4,4’－ジフェニルジカルボン酸、4,4’－トリフェニルジカルボン酸、2,6 －ナフタレンジカルボン酸、ジフェニルエーテル－4,4’－ジカルボン酸、ジフェノキシエタン－4,4’－ジカルボン酸、ジフェノキシブタン－4,4’－ジ

カルボン酸、ジフェニルエタン－4,4'－ジカルボン酸、イソフタル酸、ジフェニルエーテル－3,3'－ジカルボン酸、ジフェノキシエタン－3,3'－ジカルボン酸、ジフェニルエタン－3,3'－ジカルボン酸、ナフタレン－1,6－ジカルボン酸の如き芳香族ジカルボン酸、または、クロロテレフタル酸、ジクロロテレフタル酸、ブロモテレフタル酸、メチルテレフタル酸、ジメチルテレフタル酸、エチルテレフタル酸、メトキシテレフタル酸、エトキシテレフタル酸の如き前記芳香族ジカルボン酸のアルキル、アルコキシまたはハロゲン置換体等があげられる。

脂環族ジカルボン酸としては、トランス－1,4－シクロヘキサンジカルボン酸、ジス－1,4－シクロヘキサンジカルボン酸、1.3－シクロヘキサンジカルボン酸等の脂環族ジカルボン酸またはトランス－1,4－（1－メチル）シクロヘキサンジカルボン酸、トランス－1,4－（1－クロル）シクロヘキサンジカルボン酸等、上記脂環族ジカルボン酸のアルキル、アルコキシ、またはハロゲン置換体等があげられる。

芳香族ジオールとしては、ハイドロキノン、レゾルシン、4,4'－ジヒドロキシジフェニル、4,4'－ジヒドロキシトリフェニル、2,6－ナフタレンジオール、4,4'－ジヒドロキシジフェニルエーテル、ビス（4－ヒドロキシフェノキシ）エタン、3,3'－ジヒドロキシジフェニル、3,3'－ジヒドロキシジフェニルエーテル、1,6－ナフタレンジオール、2,2－ビス（4－ヒドロキシフェニル）プロパン、2,2－ビス（4－ヒドロキシフェニル）メタン等の芳香族ジオールまたは、クロロハイドロキノン、メチルハイドロキノン、1－ブチルハイドロキノン、フェニルハイドロキノン、メトキシハイドロキノン、フェノキシハイドロキノン：4－クロルレゾルシン、4－メチルレゾルシン等上記芳香族ジオールのアルキル、アルコキシまたはハロゲン置換体があげられる。

脂環族ジオールとしては、トランス－1,4－シクロヘキサンジオール、シス－1,4－シクロヘキサンジオール、トランス－1,4－シクロヘキサンジメタノール、シス－1,4－シクロヘキサンジメタノール、トランス－1,3－シクロヘキサンジオール、シス－1,2－シクロヘキサンジオール、トランス－1,3－シクロヘキサンジメタノールの如き脂環族ジオールまたは、トランス－1,4－（1－メチル）シクロヘキサンジオール、トランス－1,4－（1－クロロ）シクロヘキサンジオールの如き上記脂環族ジオールのアルキル、アルコキシまたはハロゲン置換体があげられる。

脂環族ジオールとしては、エチレングリコール、1,3－プロパンジオール、1,4－ブタンジオール、ネオペンチルグリコール等の直鎖状または分枝状脂肪族ジオールがあげられる。

芳香族ヒドロキシカルボン酸としては、4－ヒドロキシ安息香酸、3－ヒドロキシ安息香酸、6－ヒドロキシ－

2－ナフトエ酸、6－ヒドロキシ－1－ナフトエ酸等の芳香族ヒドロキシカルボン酸または、3－メチル－4－ヒドロキシ安息香酸、3,5－ジメチル－4－ヒドロキシ安息香酸、2,6－ジメチル－4－ヒドロキシ安息香酸、3,5－ジメトキシ－4－ヒドロキシ安息香酸、3－メトキシ－4－ヒドロキシ安息香酸、6－ヒドロキシ－5－メチル－2－ナフトエ酸、6－ヒドロキシ－5－メトキシ－2－ナフトエ酸、3－クロロ－4－ヒドロキシ安息香酸、2－クロロ－4－ヒドロキシ安息香酸、2,3－ジクロロ－4－ヒドロキシ安息香酸、3,5－ジクロロ－4－ヒドロキシ安息香酸、2,5－ジクロロ－4－ヒドロキシ安息香酸、3－ブロモ－4－ヒドロキシ安息香酸、6－ヒドロキシ－5－クロロ－2－ナフトエ酸、6－ヒドロキシ－7－クロロ－2－ナフトエ酸、6－ヒドロキシ－5,7－ジクロロ－2－ナフトエ酸等の芳香族ヒドロキシカルボン酸のアルキル、アルコキシまたはハロゲン置換体があげられる。

芳香族メルカプトカルボン酸としては、4－メルカプト安息香酸、3－メルカプト安息香酸、6－メルカプト－2－ナフトエ酸、7－メルカプト－2－ナフトエ酸等があげられる。

芳香族ジチオールとしては、ベンゼン－1,4－ジチオール、ベンゼン－1,3－ジチオール、2,6－ナフタレンジチオール、2,7－ナフタレンジチオール等があげられる。

芳香族メルカプトフェノールとしては、4－メルカプトフェノール、3－メルカプトフェノール、6－メルカプトフェノール、7－メルカプトフェノール等があげられる。

芳香族ヒドロキシアミン、芳香族ジアミンとしては4－アミノフェノール、N－メチル－4－アミノフェノール、1,4－フェニレンジアミン、N－メチル－1,4－フェニレンジアミン、N,N'－ジメチル－1,4－フェニレンジアミン、3－アミノフェノール、3－メチル－4－アミノフェノール、2－クロロ－4－アミノフェノール、4－アミノ－1－ナフトール、4－アミノ－4'－ヒドロキシジフェニル、4－アミノ－4'－ヒドロキシジフェニルエーテル、4－アミノ－4'－ヒドロキシジフェニルメタン、4－アミノ－4'－ヒドロキシジフェニルスルフィド、4,4'－ジアミノフェニルスルフィド（チオジアニリン）、4,4'－ジアミノジフェニルスルホン、2,5－ジアミノトルエン、4,4'－エチレンジアニリン、4,4'－ジアミノフェノキシエタン、4,4'－ジアミノフェニルメタン（メチレンジアニリン）、4,4'－ジアミノジフェニルエーテル（オキシジアニリン）などが挙げられる。

上記各成分からなる上記ポリマーI）～VIII）は、構成成分及びポリマー中の組成比、シークエンス分布によっては、異方性溶融相を形成するものとしないものが存在するが、本発明で用いられるポリマーは上記のポリマー

の中で異方性溶融相を形成するものに限られる。

本発明で用いるのに好適な異方性溶融相を形成するポリマーである上記Ⅰ）、II）、III）のポリエステル及びVIII）のポリエステルアミドは、縮合により所要の反復単位を形成する官能基を有している有機モノマー化合物同士を反応させることのできる多様なエステル形成法により生成させることができる。たとえば、これらの有機モノマー化合物の官能基はカルボン酸基、ヒドロキシル基、エステル基、アシルオキシ基、酸ハロゲン化物、アミン基などでよい。上記有機モノマー化合物は、溶融アシドリシス法により熱交換流体を存在させずに反応させることができる。この方法ではモノマーをまず一緒に加熱して反応物質の溶融溶液を形成する。反応を続けていくと固体のポリマー粒子が液中に懸濁するようになる。縮合の最終段階で副生した揮発物（例、酢酸または水）の除去を容易にするために真空を適用してもよい。

また、スラリー重合法も本発明に用いるのに好適な完全芳香族ポリエステルの形成に採用できる。この方法では、固体生成物は熱交換媒質中に懸濁した状態で得られる。

上記の溶融アシドリシス法およびスラリー重合法のいずれを採用するにしても、完全芳香族ポリエステルを誘導する有機モノマー反応物質は、かかるモノマーの常温でのヒドロキシル基をエステル化した変性形態で（すなわち、低級アシルエステルとして）反応に供することができる。低級アシル基は炭素数約２～４のものが好ましい。好ましくは、かかる有機モノマー反応物質の酢酸エステルを反応に供する。

更に溶融アシドリシス法又はスラリー法のいずれにも任意に使用しうる触媒の代表例としては、ジアルキルスズオキシド（例、ジブチルスズオキシド）、ジアリールスズオキシド、二酸化チタン、三酸化アンチモン、アルコキシチタンシリケート、チタンアルコキシド、カルボン酸のアルカリおよびアルカリ土類金属塩（例、酢酸亜鉛）、ルイス（例、BF_3）、ハロゲン化水素（例、HCl）などの気体状酸触媒などが挙げられる。触媒の使用量は一般にはモノマーの全重量に基づいて約0.001 ～1 ＊

＊重量%、特に約0.01～0.2 重量%である。

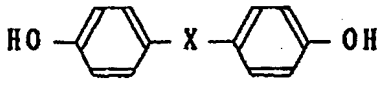
本発明に使用するのに適した完全芳香族ポリマーは、一般溶剤には実質的に不溶である傾向を示し、したがって溶液加工には不向きである。しかし、既に述べたように、これらのポリマーは普通の溶融加工法により容易に加工することができる。特に好ましい完全芳香族ポリマーはペンタフルオロフェノールにはいくらか可溶である。

本発明で用いるのに好適な完全芳香族ポリエステルは一般に重量平均分子量が約2,000 ～200,000 、好ましくは約10,000～50,000、特に好ましくは約20,000～25,000である。一方、好適な完全芳香族ポリエステルアミドは一般に分子量が約5,000 ～50,000、好ましくは約10,000～30,000、例えば15,000～17,000である。かかる分子量の測定は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーならびにその他のポリマーの溶液形成を伴わない標準的測定法、たとえば圧縮成形フィルムについて赤外分光法により末端基を定量することにより実施できる。また、ペンタフルオロフェノール溶液にして光散乱法を用いて分子量を測定することもできる。

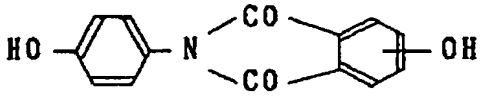
上記の完全芳香族ポリエステルおよびポリエステルアミドはまた、６０℃でペンタフルオロフェノールに0.1 重量%濃度で溶解したときに、少なくとも約 2.0dl/g、たとえば約2.0 ～10.0dl/gの対数粘度(I.V.)を一般に示す。

本発明で用いられる異方性溶融相を示すポリマーは、芳香族ポリエステル及び芳香族ポリエステルアミドが好ましく、芳香族ポリエステル及び芳香族ポリエステルアミドを同一分子鎖中に部分的に含むポリエステルも好ましい例である。

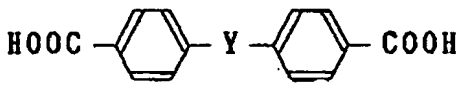
それらを構成する化合物の好ましい例は、2,6 －ナフタレンジカルボン酸、2,6 －ジヒドロキシナフタレン、1,4 －ジヒドロキシナフタレン及び６－ヒドロキシ－２－ナフトエ酸等のナフタレン化合物、4,4’－ジフェニルジカルボン酸、4,4’－ジヒドロキシビフェニル等のビフェニル化合物、下記一般式（Ⅰ）、（II）又は（III）で表わされる化合物：



（Ⅰ）



（II）



（III）

（但し、x:アルキレン（C_1～C_4）、アルキリデン、-O-、-SO-、$-SO_2-$、-S-、-CO-より選ばれる基

Y:$-(CH_2)_n-$（n＝1～4）、$-O(CH_2)_nO-$(n＝1～4)より選ばれる基)

p－ヒドロキシ安息香酸、テレフタル酸、ハイドロキノン、p－アミノフェノール及びp－フェニレンジアミン等のパラ位置換のベンゼン化合物及びそれらの核置換ベンゼン化合物（置換基は塩素、臭素、メチル、フェニル、1－フェニルエチルより選ばれる）、イソフタル酸、レゾルシン等のエタ位置換のベンゼン化合物である。

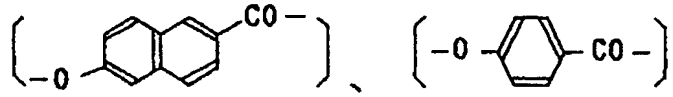
又、上述の構成成分を同一分子鎖中に部分的に含むポリエステルの好ましい例は、ポリアルキレンテレフタレート*

*トであり、アルキル基の炭素数は2乃至4である。

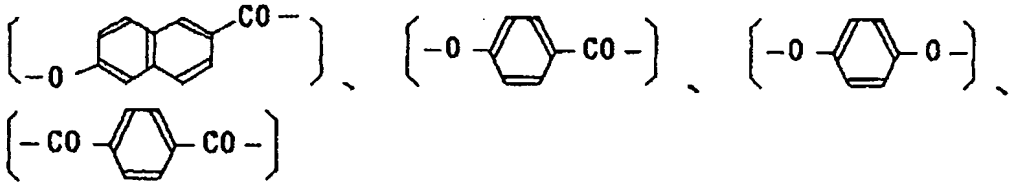
上述の構成成分の内、ナフタレン化合物、ビフェニル化合物、パラ位置換ベンゼン化合物より選ばれる1種若しくは2種以上の化合物を必須の構成成分として含むものが更に好ましい例である。又、p－位置換ベンゼン化合物の内、p－ヒドロキシ安息香酸、メチルハイドロキノン及び1－フェニルエチルハイドロキノンは特に好ましい例である。

構成成分の具体的な組み合わせとしては以下のものが例示される。

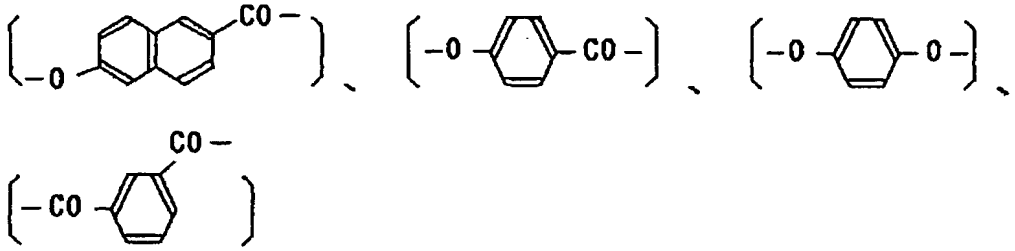
1)



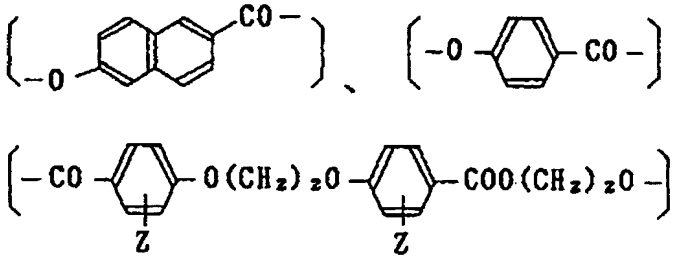
2)



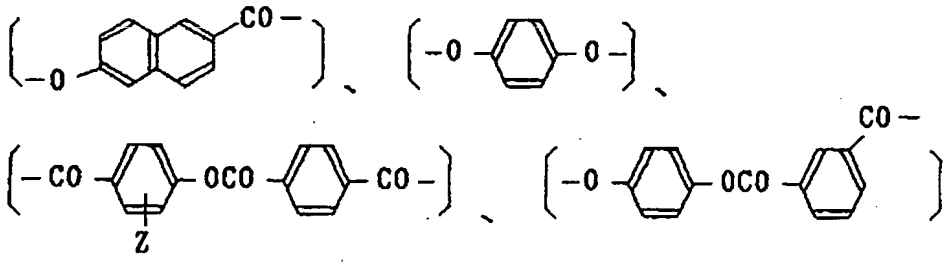
3)



4)



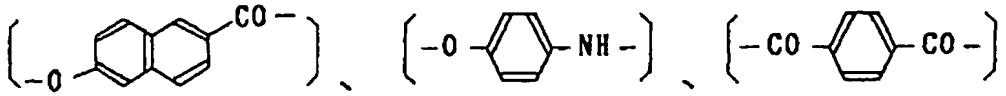
5)



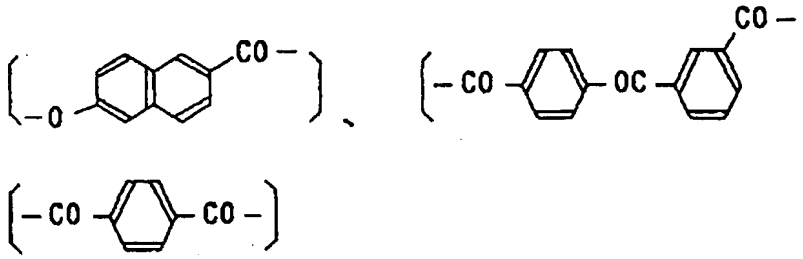
6)

(6)

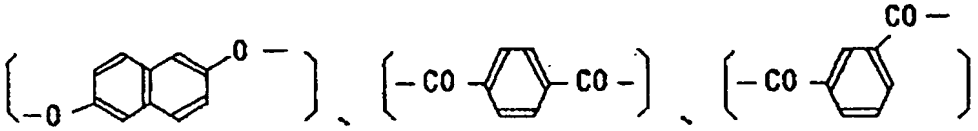
11 12



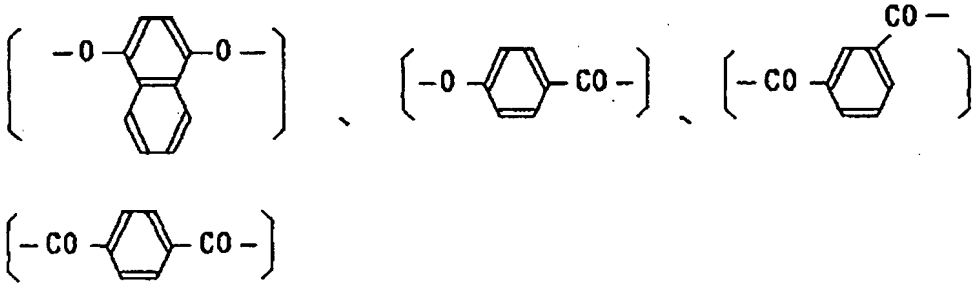
7)



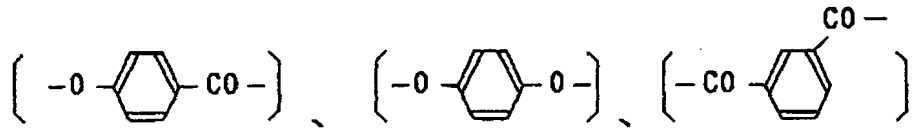
8)



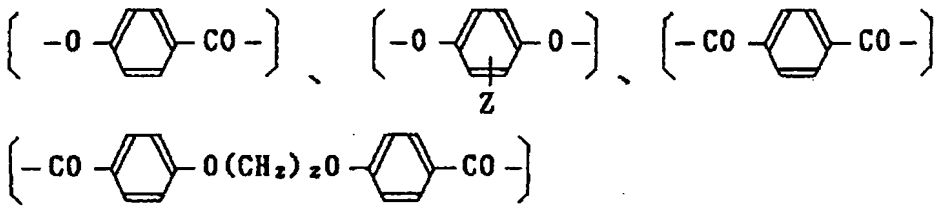
9)



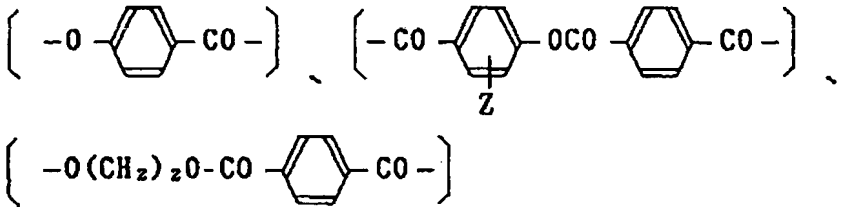
10)



11)

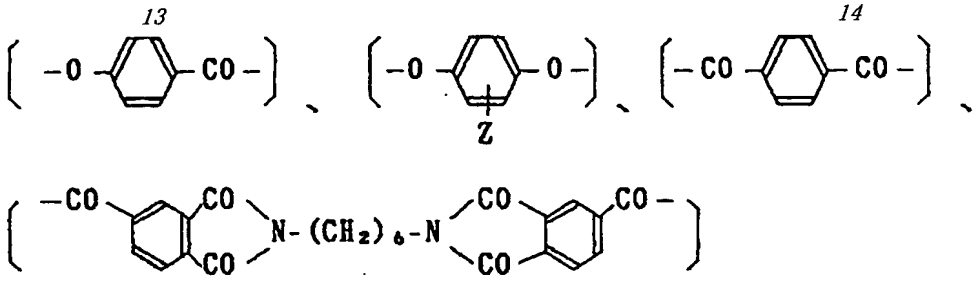


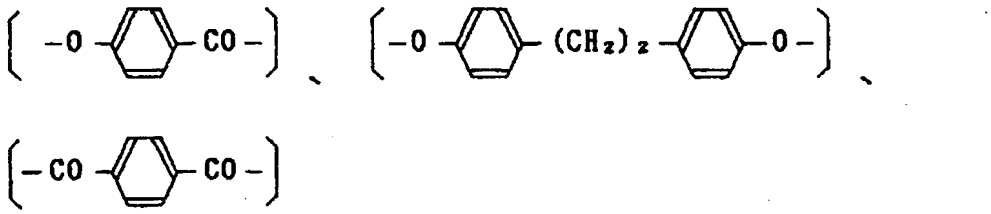
12)

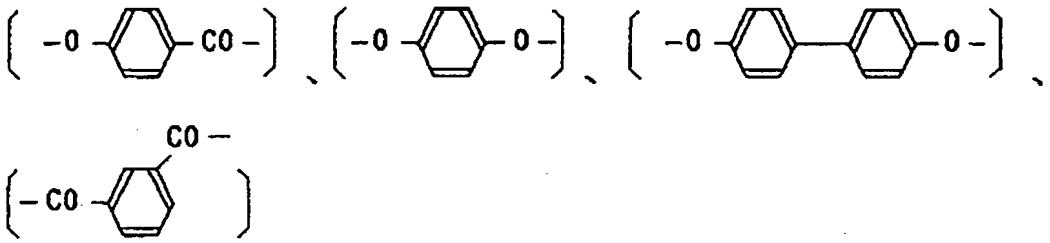


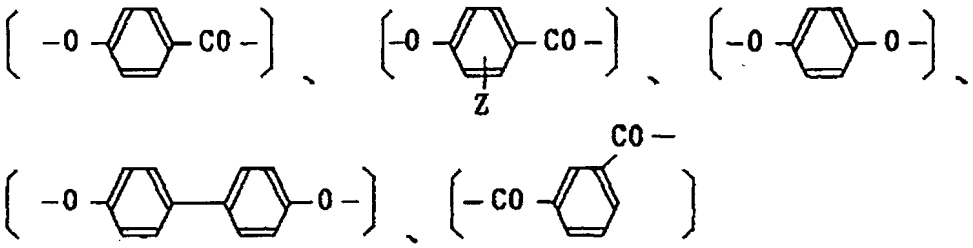
13)

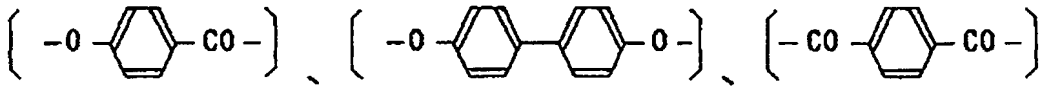
(7)

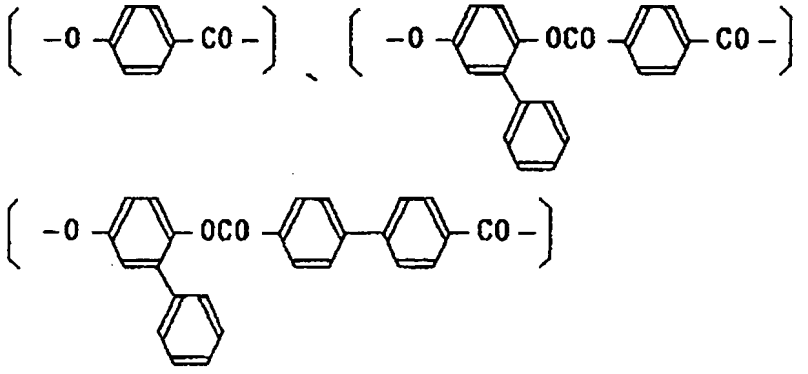
13) 

14) 

15) 

16) 

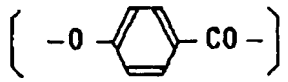
17) 

18) 

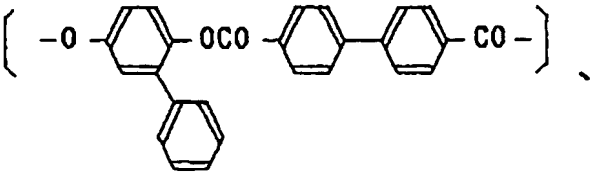
19)

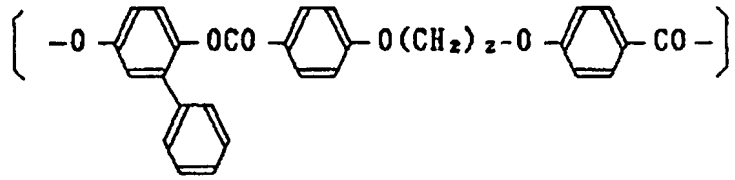
(8)

15

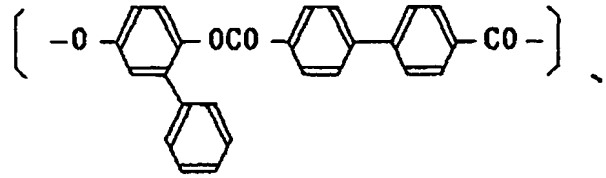


16

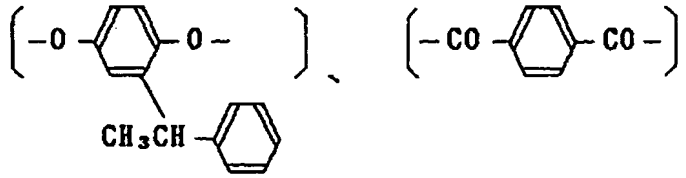




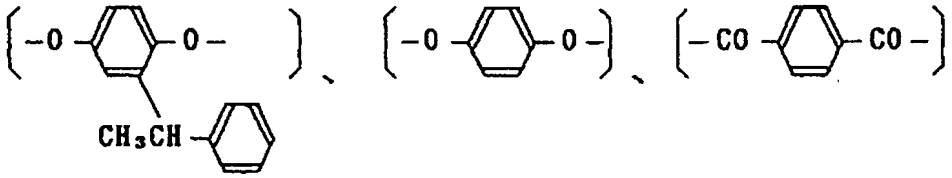
20)



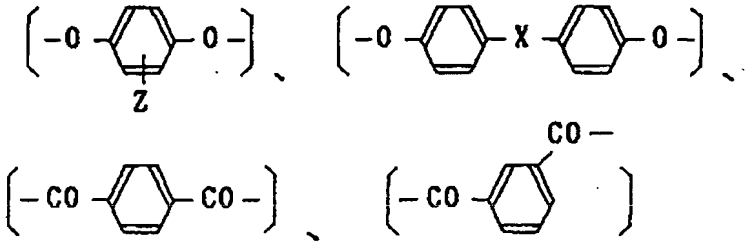
21)



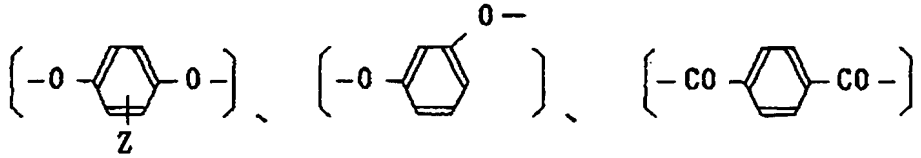
22)



23)

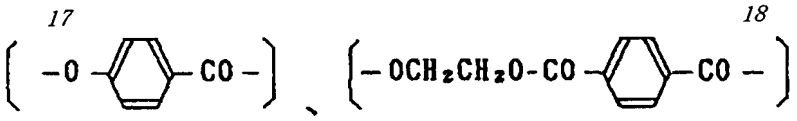


24)

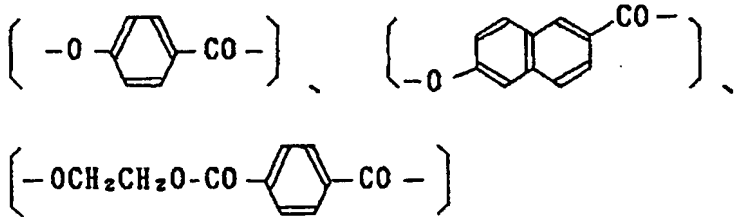


25)

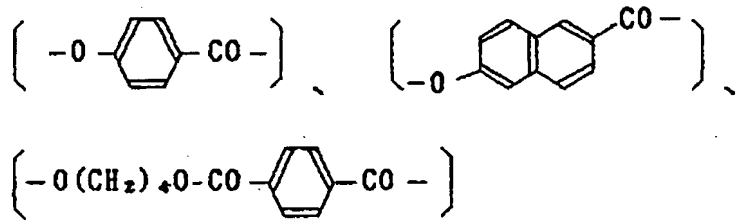
(9)



26)



27)

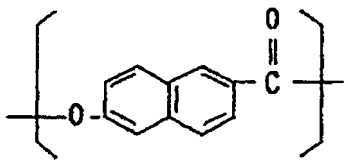


式中 Zは-Cl, -Br, $-CH_3$より選ばれる置換基であり、 Xはアルキレン（C_1～C_4）、アルキリデン、-O-、-SO-、-SO2-、-S-、-CO-より選ばれる置換基である。

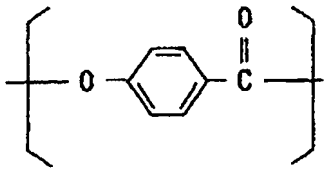
本発明で用いられるのに特に好ましい異方性溶融相を形成するポリエステルは、６－ヒドロキシ－２－ナフトイル、2,6 －ジヒドロキシナフタレン及び2,6 －ジカルボキシナフタレン等のナフタレン部分含有反復単位を約１０モル%以上の量で含有するものである。好ましいポリエステルアミドは上述ナフタレン部分と４－アミノフェノール又は1,4 －フェニレンジアミンよりなる部分との反復単位を含有するものである。具体的には以下の通りである。

(1)　本質的に下記反復単位ＩおよびIIからなるポリエステル。

I



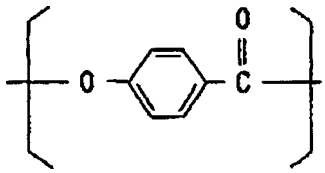
II



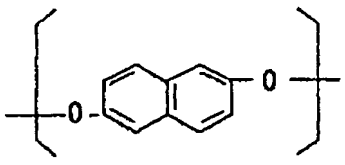
このポリエステルは約１０～９０モル%の単位Ｉと約１０～９０モル%の単位IIを含有する。１態様において単位Ｉは約６５～８５モル%、好ましくは約７０～８０モル%（例、約７５モル%）の量まで存在する。別の態様において、単位IIは約１５～３５モル%、好ましくは約２０～３０モル%というずっと低濃度の量で存在する。また環に結合している水素原子の少なくとも一部は、場合により、炭素数１～４のアルキル基、炭素数１～４のアルコキシ基、ハロゲン、フェニル、置換フェニルおよびこれらの組み合わせよりなる群から選ばれた置換基により置換されていてもよい。

(2)　本質的に下記反復単位Ｉ、IIおよびIIIからなるポリエステル。

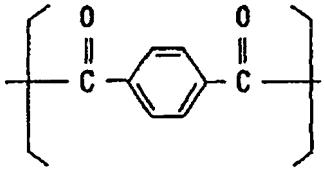
I



II



III

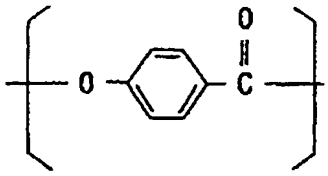


このポリエステルは約３０～７０モル%の単位Ｉを含有する。このポリエステルは、好ましくは、約４０～６０モル%の単位Ｉ、約２０～３０モル%の単位II、そして約２０～３０モル%の単位IIIを含有する。また、環に結合している水素原子の少なくとも一部は、場合によ

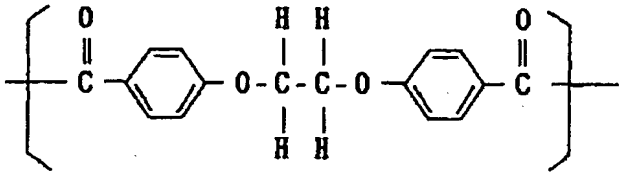
り、炭素数１～４のアルキル基、炭素数１～４のアルコキシ基、ハロゲン、フェニル、置換フェニルおよびこれらの組み合わせよりなる群から選ばれた置換基により置換されていてもよい。

(3) 本質的に下記反復単位Ｉ、II、IIIおよびIVからなるポリエステル：

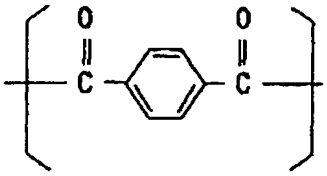
I



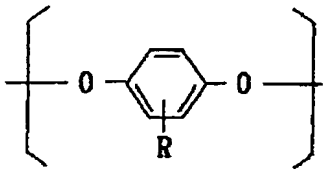
II



III



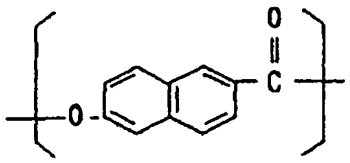
IV



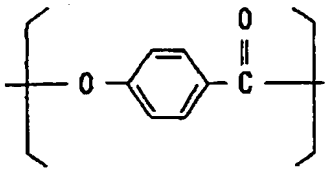
（式中、Ｒはメチル、クロロ、ブロモまたはこれらの組み合せを意味し、芳香環上の水素原子に対する置換基である）、からなり、かつ単位Ｉを約２０～６０モル%、単位IIを約５～１８モル%、単位IIIを約５～３５モル%、そして単位IVを約２０～４０モル%の量で含有する。このポリエステルは、好ましくは、約３５～４５モル%の単位Ｉ、約１０～１５モル%の単位II、約１５～２５モル%の単位III、そして約２５～３５モル%の単位IVを含有する。ただし、単位IIとIIIの合計モル濃度は単位IVのモル濃度に実質的に等しい。また、環に結合している水素原子の少なくとも一部は、場合により、炭素数１～４のアルキル基、炭素数１～４のアルコキシ基、ハロゲン、フェニル、置換フェニルおよびこれらの組み合わせよりなる群から選ばれた置換基により置換されていてもよい。この完全芳香族ポリエステルは、６０℃でペンタフルオロフェノールに0.3w/v% 濃度で溶解したときに少なくとも 2.0dl/gたとえば2.0 ～10.0dl/gの対数粘度を一般に示す。

(4) 本質的に下記反復単位Ｉ、II、IIIおよびIVからなるポリエステル：

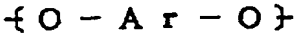
I



II

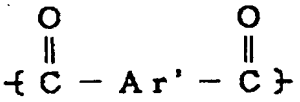


III 一般式



（式中、Arは少なくとも１個の芳香環を含む２価基を意味する）で示されるジオキシアリール単位、

IV 一般式



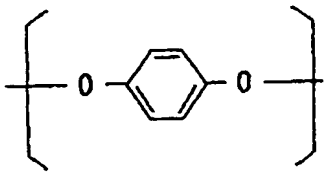
（式中、Ar'は少なくとも１個の芳香環を含む２価基を意味する）で示されるジカルボキシアリール単位、

からなり、かつ単位Ｉを約２０～４０モル%、単位IIを１０モル%を越え、約５０モル%以下、単位IIIを５モル%を越え、約３０モル%以下、そして単位IVを５モル%を越え、約３０モル%以下の量で含有する。このポリエステルは、好ましくは、約２０～３０モル%（例、約２５モル%）の単位Ｉ、約２５～４０モル%（例、約３５モル%）の単位II、約１５～２５モル%（例、約２０モル%）の単位III、そして約１５～２５モル%（例、約２０モル%）の単位IVを含有する。また、環に結合している水素原子の少なくとも一部は、場合により、炭素数１～４のアルキル基、炭素数１～４のアルコキシ基、ハロゲン、フェニル、置換フェニルおよびこれらの組み合わせよりなる群から選ばれた置換基により置換されていてもよい。

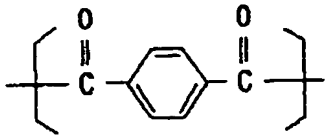
単位IIIとIVは、ポリマー主鎖内でこれらの単位を両側の他の単位につなげている２価の結合が１または２以上の芳香環上で対称的配置にある（たとえば、ナフタレン環上に存在するときは互いにパラの位置か、または対角環上に配置されている）という意味で対称的であるのが好ましい。ただし、レゾルシノールおよびイソフタル酸から誘導されるような非対称単位も使用できる。

好ましいジオキシアリール単位IIIは

21



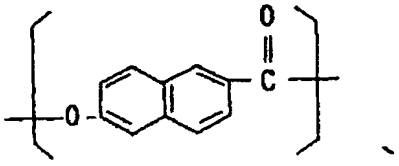
であり、好ましいジカルボキシアリール単位IVは



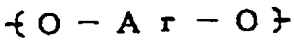
である。

(5) 本質的に下記反復単位Ⅰ、IIおよびIIIからなるポリエステル：

Ⅰ



II 一般式



（式中、Arは少なくとも１個の芳香環を含む２価基を意味する）で示されるジオキシアリール単位、

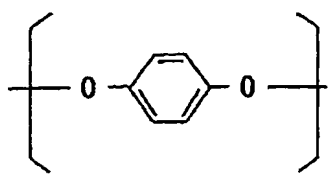
III 一般式



（式中、Ar'は少なくとも１個の芳香環を含む２価基を意味する）で示されるジカルボキシアリール単位、

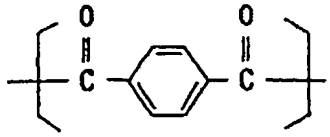
からなり、かつ単位Ⅰを約１０～９０モル%、単位IIを５～４５モル%、単位IIIを５～４５モル%の量で含有する。このポリエステルは、好ましくは、約２０～８０モル%の単位Ⅰ、約１０～４０モル%の単位II、そして約１０～４０モル%の単位IIIを含有する。さらに好ましくは、このポリエステルは約６０～８０モル%の単位Ⅰ、約１０～２０モル%の単位II、そして約１０～２０モル%の単位IIIを含有する。また、環に結合している水素原子の少なくとも一部は、場合により、炭素数１～４のアルキル基、炭素数１～４のアルコキシ基、ハロゲン、フェニル、置換フェニルおよびこれらの組み合わせよりなる群から選ばれた置換基により置換されていてもよい。

好ましいジオキシアリール単位IIは



であり、好ましいジカルボキシアリール単位IIIは

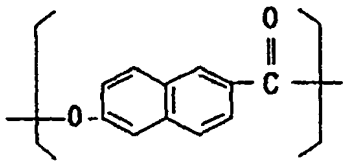
22



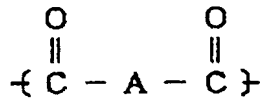
である。

(6) 本質的に下記反復単位Ⅰ、II、IIIおよびIVからなるポリエステルアミド：

Ⅰ

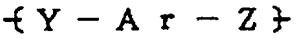


II 一般式



（式中、Aは少なくとも１個の芳香環を含む２価基または２価トランスーシクロヘキサン基を意味する）、

III 一般式



（式中、Arは少なくとも１個の芳香環を含む２価基、YはO，NHまたはNR、ZはNHまたはNRをそれぞれ意味し、Rは炭素数１～６のアルキル基か、またはアリール基を意味する）、

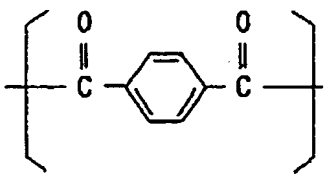
IV 一般式



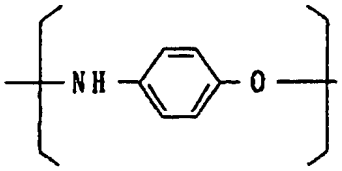
（式中、Ar'は少なくとも１個の芳香環を含む２価基を意味する）、

からなり、かつ単位Ⅰを約１０～９０モル%、単位IIを約５～４５モル%、単位IIIを約５～４５モル%、そして単位IVを約０～４０モル%の量で含有する。また、環に結合している水素原子の少なくとも一部は、場合により、炭素数１～４のアルキル基、炭素数１～４のアルコキシ基、ハロゲン、フェニル、置換フェニルおよびこれらの組み合わせよりなる群から選ばれた置換基により置換されていてもよい。

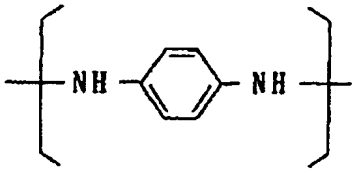
好ましいジカルボキシアリール単位IIは



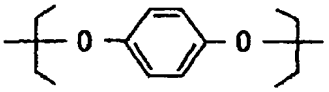
であり、好ましい単位IIIは



または



であり、好ましいジオキシアリール単位IVは



である。

更に、本発明の異方性溶融相を形成するポリマーには、一つの高分子鎖の一部が上記までに説明した異方性溶融相を形成するポリマーのセグメントから構成され、残りの部分が異方性溶融相を形成しない熱可塑性樹脂のセグメントから構成されるポリマーも含まれる。

本発明では発行素子装置の反射板を構成する材料として上記の様な液晶ポリエステルに、白色顔料、フィラーを１種又は２種以上混合充填配合してなる液晶ポリエステル樹脂組成物を使用するのが好ましい。それらの配合量は液晶ポリエステル全組成物に対して白色顔料 0.5重量%以上、フィラー１重量%以上が適当である。好ましくは白色顔料７～70重量%、フィラー10～70重量%であり、特に好ましくは白色顔料10～50重量%、フィラー25～50重量%である。

フィラーとしては従来技術に於いて公知のものが使用し得るが、例えばガラス繊維、炭素繊維、グラファイト繊維、金属繊維、シリコンカーバイト繊維、アスベスト、ウォラストナイト、繊維状チタン酸カリウム等の無機繊維、ホイスカー、各種の有機繊維等の繊維状フィラー、雲母（白雲母、金雲母、セリサイト等）、板状ガラス（ガラスフレーク）、タルク、金属箔等の板状フィラー、炭酸カルシウム、石英粉、シリカ、炭酸マグネシウム、硫酸カルシウム、クレー、ケイ藻土、アルミナ、ケイ砂、ガラス粉、ガラスビーズ、金属粒、グラファイト等の粒状フィラー等を１種又は２種以上混合使用できる。特にガラス繊維が好ましい。

白色顔料も従来公知のものが使用し得るが、酸化チタン、酸化亜鉛、硫化亜鉛、鉛白、硫酸塩化合物、例えば硫酸亜鉛、バライト、リトポン等が例示される。特に酸化チタンが好ましい。

本発明の実施に当っては、特にガラス繊維と酸化チタンからなる組成物から構成される反射板が好ましいが、フィラーと白色顔料とは夫々二種以上のものから構成されていてもよい。

〔発明の効果〕

本発明によれば、上記の如き液晶ポリエステルを使用するので、その高流動性のため反射板ケースを精密成型することができ、且つ耐熱性が良いため加熱による変形が少なく、理想的な反射板が得られ、これを使用した発光素子装置の性能は非常に優れたものである。

本発明に於いては、好ましくは液晶ポリエステルにガラス繊維及び酸化チタン等の白色顔料を配合した樹脂組成物が使用されるが、これによって更に耐熱性を向上させ、反射率を上げることができる。液晶ポリエステルの場合は他の従来使用されていたＡＢＳ樹脂等の合成樹脂に比してこれらの充填剤を配合しても液晶ポリエステルの高流動性に支えられて反射板ケースの微細な正確な成型が可能であり、且つ通常この種の電子部品に要求される耐熱性の基準である260℃, 10秒間という半田耐熱は勿論、他の透明性を有する熱硬化性樹脂、例えばエポキシ樹脂、ウレタン樹脂及びそれらの変性樹脂等や、透明な熱可塑性樹脂、例えばアクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアクリレート樹脂等による反射板ケースの封止の際にも充分な耐熱性を有する。また、上記の如き白色顔料の配合により反射板に要求される本来の性能である反射率についても充分高いものが得られる。

〔実施例〕

以下、実施例を挙げて本発明を更に説明するが、これらの実施例に限定されるものではない。

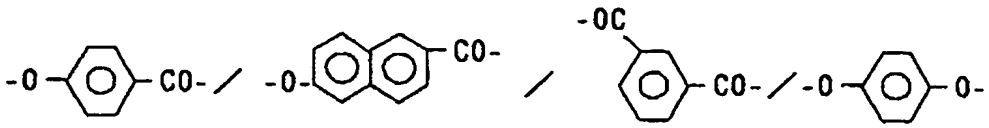
実施例１～１７及び比較例１～２

下記の液晶ポリエステル樹脂Ａ，Ｂ，Ｃ，Ｄの夫々とガラス繊維、ガラスフレーク及び各種白色顔料を表１に示す割合で混合し、押出成型機でペレット化したものを使用して１辺２㎜、厚み0.2㎜ の立方体状の発光素子装置の反射板ケースを成型した。このケースを 260℃で10秒間加熱浴に浸漬して、放冷後に原形状からの歪みを３次元測定機により測定し変形率を測定することにより耐熱寸法安定性を調べた。また、上記樹脂組成物から成型した反射板の反射率をフーリエ変換赤外分光計にて700nm、800nm 、900nm の各々について測定した。結果を表１に示す。

（液晶ポリエステル試料）

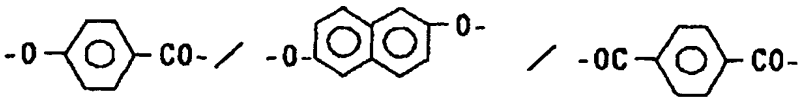
使用した液晶性ポリエステル樹脂Ａ，Ｂ，Ｃ及びＤは下記の構成単位を有するものである。

Ａ：



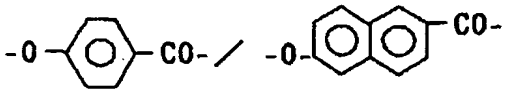
＝６０／２０／１０／１０

B：



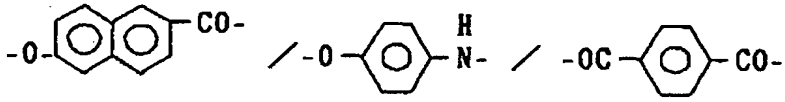
＝６０／２０／２０

C：



＝７０／３０

D：



＝７０／１５／１５

上記樹脂Ａ，Ｂ，Ｃ及びＤの具体的製法を次に記す。

＜樹脂Ａ＞

４－アセトキシ安息香酸１０８１重量部、６－アセトキシ－２－ナフトエ酸４６０重量部、イソフタル酸１６６重量部、1,4 －ジアセトキシベンゼン１９４重量部を撹拌機、窒素導入管及び留出管を備えた反応器中に仕込み、窒素気流化でこの混合物を２６０℃に加熱した。反応器から酢酸を留出させながら、２６０℃で2.5 時間、次に２８０℃で３時間激しく撹拌した。更に、温度を３２０℃に上昇させ、窒素の導入を停止した後、徐々に反応器中を減圧させ１５分後に圧力を0.1 mmHgに下げ、この温度，圧力で１時間撹拌した。

得られた重合体は0.1 重量%濃度，６０℃でペンタフルオロフェノール中で測定して5.0 の固有粘度を有していた。

＜樹脂Ｂ＞

４－アセトキシ安息香酸１０８１重量部、2,6 －ジアセトキシナフタレン４８９重量部、テレフタル酸３３２重量部を撹拌機、窒素導入管及び留出管を備えた反応器中に仕込み、窒素気流下でこの混合物を２５０℃に加熱した。反応器から酢酸を留出させながら、２５０℃で２時間、次に２８０℃で2.5 時間激しく撹拌した。更に、温度を３２０℃に上昇させ、窒素の導入を停止した後、徐々に反応器中を減圧させ３０分後に圧力を0.2 mmHgに下げ、この温度，圧力で1.5 時間撹拌した。

得られた重合体は0.1 重量%濃度，６０℃でペンタフルオロフェノール中で測定して2.5 の固有粘度を有していた。

＜樹脂Ｃ＞

４－アセトキシ安息香酸１２６１重量部、６－アセトキシ－２－ナフトエ酸６９１重量部、を撹拌機、窒素導入管及び留出管を備えた反応器中に仕込み、窒素気流下でこの混合物を250 ℃に加熱した。反応器から酢酸を留出させながら、２５０℃で３時間、次に２８０℃で２時間激しく撹拌した。更に、温度を３２０℃に上昇させ、窒素の導入を停止した後、徐々に反応器中を減圧させ２０分後に圧力を0.1 mmHgに下げ、この温度，圧力で１時間撹拌した。

得られた重合体は0.1 重量%濃度，６０℃でペンタフルオロフェノール中で測定して5.4 の固有粘度を有していた。

＜樹脂Ｄ＞

６－アセトキシ－２－ナフトエ酸１６１２重量部、４－アセトキシアセトアニリド２９０重量部、テレフタル酸２４９重量部、酢酸ナトリウム0.4 重量部を撹拌機、窒素導入管及び留出管を備えた反応器中に仕込み、窒素気流下でこの混合物を２５０℃に加熱した。反応器から酢酸を留出させながら、２５０℃で１時間、次に３００℃で３時間激しく撹拌した。更に、温度を３４０℃に上昇させ、窒素の導入を停止した後、徐々に反応器中を減圧させ３０分後に圧力を0.2 mmHgに下げ、この温度，圧力で３０分間撹拌した。

得られた重合体は0.1 重量%濃度，６０℃でペンタフルオロフェノール中で測定して3.9 の固有粘度を有してい

た。

表 1

		組成物(*1参照)			反射率(%)			耐熱寸法安定性変形率(%)
		樹脂	ガラス繊維	フィラー	700nm	800nm	900nm	
実施例	1	A(50)	(30)	TiO_2(20)	80.5	82.8	84.9	0.16
	2	A(70)	(30)	—	52.5	52.3	53.5	0.32
	3	A(100)	—	—	51.2	50.6	52.0	1.5
	4	B(50)	(30)	TiO_2(20)	80.5	83.3	85.0	0.17
	5	C(50)	(30)	TiO_2(20)	80.4	82.9	85.1	0.16
	6	D(50)	(30)	TiO_2(20)	82.1	83.3	86.6	0.10
	7	B(100)	—	—	51.2	50.9	52.2	1.4
	8	C(100)	—	—	51.3	50.1	52.4	1.5
	9	D(100)	—	—	54.6	55.4	57.7	1.1
	10	A(50)	(30)	リトポン(20)	81.5	81.3	83.7	0.29
	11	A(50)	(30)	酸化亜鉛(20)	75.4	79.9	81.9	0.27
	12	A(50)	(30)	鉛白(20)	75.1	81.2	83.8	0.28
	13	A(50)	(30)	バライト(20)	75.5	80.1	83.9	0.67
	14	A(65)	(30)	TiO_2(20)	62.2	62.7	64.0	0.26
	15	A(72)	(8)	TiO_2(20)	80.4	82.8	84.7	0.98
	16	A(80)	—	TiO_2(20)	81.1	83.5	85.9	1.4
	17	A(50)	(30)*2	TiO_2(20)	80.3	81.5	83.9	0.15
比較例	1	ABS(50)	(30)	TiO_2(20)	81.0	82.9	83.6	樹脂溶融
	2	ABS(100)	—	—	51.6	51.1	52.3	樹脂溶融

注) *1；組成物欄の()内の数字は重量部

*2；ガラス繊維(15)＋ガラスフレーク(15)